

PATENT COOPERATION TREA..

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION
(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner
US Department of Commerce
United States Patent and Trademark
Office, PCT
2011 South Clark Place Room
CP2/5C24
Arlington, VA 22202
ETATS-UNIS D'AMERIQUE
in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 01 November 2000 (01.11.00)	
International application No. PCT/EP00/02241	Applicant's or agent's file reference Le A 33 591-
International filing date (day/month/year) 14 March 2000 (14.03.00)	Priority date (day/month/year) 27 March 1999 (27.03.99)
Applicant ECKEL, Thomas et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

15 September 2000 (15.09.00)

in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election was

was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer Nestor Santesso Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	---

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/02241

A. KLASSEFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 C08K5/523 C08L69/00 // (C08L69/00, 51:04), (C08L69/00, 55:02, 25:12)

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 C08K C08L

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

WPI Data, PAJ, CHEM ABS Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 96 27600 A (KATSUMATA TSUTOMU ; UEDA EIJI (JP); KASAHARA HIDEO (JP); ASAHI CHEM) 12. September 1996 (1996-09-12) in der Anmeldung erwähnt & US 6 083 428 A 4. Juli 2000 (2000-07-04) Ansprüche 1,2; Beispiele 6-9; Tabelle 3 Spalte 11, Zeile 1 - Zeile 12	1-4,7-15
X	EP 0 611 798 A (ASAHI CHEMICAL IND) 24. August 1994 (1994-08-24) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche 1,12,15-18; Beispiel 23; Tabellen 1,10 Seite 7, Zeile 26 -Seite 9, Zeile 43	1-4,7-15
X	DE 197 34 661 A (BAYER AG) 18. Februar 1999 (1999-02-18) Ansprüche 1-14; Beispiel 4	1-4,7-15

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

- Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
- "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
- "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
- "T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
- "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden
- "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
- "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

3. August 2000

11/08/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel: (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Krische, D

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/02241

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie ^a	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 5 864 004 A (SUNG RYONG KIM ET AL) 26. Januar 1999 (1999-01-26) Anspruch 1; Beispiele 1-3 Spalte 5, Zeile 17 - Zeile 23 Spalte 6, Zeile 42 - Zeile 65 ----	1-4, 7-15
X	BRIGHT ET AL: "aromatic oligomeric phosphates" ANNU. TECH. CONF.-SOC. PLAST. ENG., Bd. 56, Nr. 3, 26. April 1998 (1998-04-26), Seiten 2875-2879-9, XP002101625 das ganze Dokument ----	1-4, 7-12, 14, 15
X	EP 0 816 434 A (BASF AG) 7. Januar 1998 (1998-01-07) Ansprüche 1-4,8,9; Beispiel 1 Seite 8, Zeile 57 -Seite 9, Zeile 20 ----	1-4, 7-10, 12-15
X	EP 0 522 397 A (BAYER AG) 13. Januar 1993 (1993-01-13) Ansprüche 1,8,9,11; Beispiel 3; Tabelle 1 ----	1-4, 7-15
P, X	FR 2 781 807 A (CHEIL IND INC) 4. Februar 2000 (2000-02-04) Ansprüche 1-11; Beispiel 1; Tabelle 4 Seite 6, Zeile 7 - Zeile 21 Seite 17, Zeile 20 -Seite 18, Zeile 12 Seite 20, Zeile 15 -Seite 23, Zeile 5 ----	1-5, 7-15
P, X	EP 0 936 243 A (GEN ELECTRIC) 18. August 1999 (1999-08-18) Ansprüche 1,5-9; Beispiel 2 Seite 9, Zeile 44 -Seite 10, Zeile 2 ----	1-5, 7-15
E	DE 198 53 108 A (BAYER AG) 25. Mai 2000 (2000-05-25) Ansprüche 1-5,12-14; Beispiel 3 -----	1-10, 12-15

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Inter. nationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/02241

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
WO 9627600 A	12-09-1996	DE 19681298 T US 6083428 A		02-04-1998 04-07-2000
EP 0611798 A	24-08-1994	DE 69321704 D DE 69321704 T FI 940464 A KR 163445 B US 5455292 A CN 1082074 A, B WO 9403535 A JP 2672932 B JP 7053876 A JP 6100760 A		26-11-1998 01-07-1999 07-02-1994 15-01-1999 03-10-1995 16-02-1994 17-02-1994 05-11-1997 28-02-1995 12-04-1994
DE 19734661 A	18-02-1999	AU 9070898 A WO 9907782 A EP 1003810 A		01-03-1999 18-02-1999 31-05-2000
US 5864004 A	26-01-1999	DE 19843922 A GB 2329639 A		01-04-1999 31-03-1999
EP 0816434 A	07-01-1998	DE 19626156 A JP 10060246 A		08-01-1998 03-03-1998
EP 0522397 A	13-01-1993	DE 4123041 A JP 5214231 A US 5272193 A		14-01-1993 24-08-1993 21-12-1993
FR 2781807 A	04-02-2000	KEINE		
EP 0936243 A	18-08-1999	CN 1229102 A JP 11310695 A		22-09-1999 09-11-1999
DE 19853108 A	25-05-2000	WO 0029476 A		25-05-2000



**VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM
GEBIET DES PATENTWESENS**

PCT

REC'D 18 JUL 2001

WIPO PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

T16

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts Le A 33 591-	WEITERES VORGEHEN	siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)
Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/02241	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 14/03/2000	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 27/03/1999
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C08K5/523		
Anmelder BAYER AKTIENGESELLSCHAFT		

<p>1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 6 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p><input type="checkbox"/> Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).</p> <p>Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.</p>
<p>3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Grundlage des Berichts II <input type="checkbox"/> Priorität III <input type="checkbox"/> Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erforderliche Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit IV <input type="checkbox"/> Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung V <input checked="" type="checkbox"/> Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erforderlichen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung VI <input checked="" type="checkbox"/> Bestimmte angeführte Unterlagen VII <input type="checkbox"/> Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung VIII <input type="checkbox"/> Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung</p>

Datum der Einreichung des Antrags 15/09/2000	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 16.07.2001
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde: Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Komenda, C Tel. Nr. +49 89 2399 8308



INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/02241

I. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):
Beschreibung, Seiten:

1-28 ursprüngliche Fassung

Patentansprüche, Nr.:

1-15 ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nukleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- Beschreibung, Seiten:
- Ansprüche, Nr.:
- Zeichnungen, Blatt:

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER
PRÜFUNGSBERICHT**

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/02241

5. Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	
	Nein: Ansprüche	1-15
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	
	Nein: Ansprüche	1-15
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-15
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen
siehe Beiblatt

VI. Bestimmte angeführte Unterlagen

1. Bestimmte veröffentlichte Unterlagen (Regel 70.10)

und / oder

2. Nicht-schriftliche Offenbarungen (Regel 70.9)

siehe Beiblatt

Zu Paragraph V:

1. Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

D1: WO 96 27600 A (KATSUMATA TSUTOMU ;UEDA EIJI (JP); KASAHARA HIDEO (JP); ASAHI CHEM) 12. September 1996 (1996-09-12) in der Anmeldung erwähnt & US 6 083 428 A 4. Juli 2000 (2000-07-04)
D2: EP-A-0 611 798 (ASAHI CHEMICAL IND) 24. August 1994 (1994-08-24) in der Anmeldung erwähnt
D3: DE 197 34 661 A (BAYER AG) 18. Februar 1999 (1999-02-18)
D4: US-A-5 864 004 (SUNG RYONG KIM ET AL) 26. Januar 1999 (1999-01-26)
D5: BRIGHT ET AL: 'aromatic oligomeric phosphates' ANNU. TECH. CONF.-SOC. PLAST. ENG., Bd. 56, Nr. 3, 26. April 1998 (1998-04-26), Seiten 2875-2879-9, XP002101625
D6: EP-A-0 816 434 (BASF AG) 7. Januar 1998 (1998-01-07)
D7: EP-A-0 522 397 (BAYER AG) 13. Januar 1993 (1993-01-13)

2. Die Anmeldung betrifft mit Ppropfpolymerisat modifizierte Polycarbonat-Formmassen enthaltend eine spezielle Phosphorverbindung gemäß Formel (I). Weiterhin können gemäß den abhängigen Ansprüchen auch weitere Komponenten (Füllstoffe, Pigmente, Stabilisatoren), sowie fluorierte Polyolefine in den Formmassen verwendet werden.

2.1 Dokument D1 (& US-A-6 083 428) beschreibt ebenfalls flammwidrige thermoplastische Formmassen, die Polycarbonat, Polytetrafluorethylen (PTFE), ein Ppropfpolymerisat, sowie 0.1 bis 30 Gew.-Teile bezogen auf 100 Gew.-Teile Polycarbonat einer Phosphorverbindung (I) enthalten. Die Phosphorverbindung in D1 ist identisch mit der anmeldungsgemäßen Phosphorverbindung der Formel (I) (siehe D1, Ansprüche 1, 2, Beispiele 6-9, Tabelle 3, Sp. 11, Z. 1-12).

2.2 Dokument D2 beschreibt flammwidrige, verstärkte thermoplastische Formmassen, enthaltend ein Polycarbonat, ein Ppropfpolymerisat und eine Phosphorverbindung (I). Die Phosphorverbindungen A, B und C aus Tabelle 1 fallen unter die in der Anmeldung angegebene Formel (I) (siehe D2, Beispiel 23, Tabellen 1, 10,

Ansprüche 1, 12, 15-18, S. 7, Z. 26 bis S. 9, Z. 43).

2.3 Dokument D3 offenbart flammwidrige Polycarbonatformmassen, die 40-98 Gew.-Teile eines Polycarbonats, 9.05-5 Gew.-Teile eines fluorierten Polyolefins, 0.1-50 Gew.-Teile einer feinstteiligen anorganischen Verbindung, 0.5-60 Gew.-Teile eines Ppropfpolymerisates, und 0.5-20 Gew.-Teile einer Phosphorverbindung der Formel (I), welche identisch ist mit der Phosphorverbindung der Anmeldung (siehe D3, Ansprüche 1-14, Beispiel 4).

2.4 Dokument D4 beschreibt flammwidrige Formmassen enthaltend 100 Gew.-Teile eines mit Ppropfpolymerisat modifizierten Polycarbonates, welches 5-95 Gew.-% Polycarbonat und 95-5 Gew.-% eines ABS-Ppropfpolymerisates enthält, 0.01-10 Gew.-Teile fluoriertes Polyolefin (PTFE), und 5-20 Gew.-Teile eines Flammenschutzmittels der Formel (I), in welchem der Rest X der Formel (II) entspricht. Daher ist die Phosphorverbindung in D4 identisch mit der anmeldungsgemäßen Phosphorverbindung (siehe D4, Anspruch 1, Beispiele 1-3, Sp. 5, Z. 17-23, Sp. 6, Z. 42-65).

2.5 Dokument D5 beschreibt die Verwendung von Phosphorverbindungen wie z.B. Bisphenol-A-bis(diphenyl-phosphat) als Flammenschutzmittel in Mischungen aus Polycarbonat und ABS (siehe D5, Tabelle 3).

2.6 Dokument D6 offenbart flammwidrige Polycarbonatformmassen, die ein aromatisches Polycarbonat, ein Ppropfpolymerisat und als Flammenschutzmittel eine schwefelhaltige Phosphorverbindung der Formel (I) enthalten, wobei dieses Flammenschutzmittel der Phosphorverbindung der Formel (I) gemäß Anmeldung mit Y = SO₂ entspricht (siehe D6, Ansprüche 1-4, 8, 9, Beispiel 1, S. 8, Z. 57 bis S. 9, Z. 20).

2.7 Dokument D7 offenbart flammwidrige Polycarbonatformmassen, die 40-90 Gew.-Teile eines thermoplastischen aromatischen Polycarbonates, 0-50 Gew.-Teile eines thermoplastischen Ppropfpolymerisates, und 1-30 Gew.-Teile eines Phosphorsäureesters von Phenolen, Bisphenolen und/oder Polyphenolen enthält. Die Phosphorkomponente VIII aus Beispiel 3 entspricht der Formel (I) der Anmeldung (siehe D7, Ansprüche 1, 8, 9, 11, Beispiel 3, Tabelle 1).

3. Da der Gegenstand der Ansprüche 1-15 bereits in den Dokumenten D1 bis D7 offenbart ist, gilt er als nicht neu und als nicht auf einer erfinderischen Tätigkeit beruhend (Art. 33(2) und Art. 33(3) PCT).
4. Der Gegenstand der Ansprüche 1 bis 15 ist gewerblich anwendbar (Art. 33(4) PCT).

Zu Paragraph VI:

Bestimmte veröffentlichte Unterlagen (Regel 70.10)

Anmelde Nr. Patent Nr.	Veröffentlichungsdatum (Tag/Monat/Jahr)	Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr)	Prioritätsdatum (zu Recht beansprucht) (Tag/Monat/Jahr)
FR-A-2 781 807	04.02.2000	31.07.1998	-
EP-A-0 936 243	18.08.1999	03.02.1999	13.02.1998
DE-A-198 53 108	25.05.2000	18.11.1998	-



INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation ⁷ : C08K 5/523, C08L 69/00 // (C08L 69/00, 51:04) (C08L 69/00, 55:02, 25:12)		A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/58394
			(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 5. Oktober 2000 (05.10.00)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/02241		(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).	
(22) Internationales Anmeldedatum: 14. März 2000 (14.03.00)			
(30) Prioritätsdaten: 199 14 139.8 27. März 1999 (27.03.99) DE			
(71) Anmelder (<i>für alle Bestimmungsstaaten ausser US</i>): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE).			
(72) Erfinder; und		Veröffentlicht	
(75) Erfinder/Anmelder (<i>nur für US</i>): ECKEL, Thomas [DE/DE]; Pfauenstrasse 51, D-41540 Dormagen (DE). ZOBEL, Michael [DE/DE]; Linnicher Strasse 10, D-40547 Düsseldorf (DE). WITTMANN, Dieter [DE/DE]; Ernst-Ludwig-Kirchner-Strasse 41, D-51375 Leverkusen (DE). DERR, Torsten [DE/DE]; Johann-Hendel-Strasse 15, D-41542 Dormagen (DE). ÖLLER, Manfred [DE/DE]; Ringofenweg 60, D-47809 Krefeld (DE).		Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.	
(74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGESELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).			

(54) Title: FLAME-RESISTANT, IMPACT-RESISTANT MODIFIED POLYCARBONATE MOLDING AND EXTRUSION MASSES

(54) Bezeichnung: FLAMMWIDRIGE, SCHLAGZÄHMODIFIZIERTE POLYCARBONAT-FORMMASSEN

(57) Abstract

The invention relates to flame-resistant polycarbonate molding and extrusion masses that are modified with graft polymers. Said molding and extrusion masses contain oligomeric phosphorus compounds on the basis of bisphenol, especially bisphenol A oligophosphate and have an excellent flame resistance, very good mechanical properties and a high thermal stability.

(57) Zusammenfassung

Die vorliegende Erfindung betrifft flammwidrige mit Ppropolymerisat modifizierte Polycarbonat-Formmassen, enthaltend oligomere Phosphor-Verbindungen auf Bisphenolbasis, insbes. Bisphenol-A-Oligophosphat, die einen ausgezeichneten Flamschutz, sehr gute mechanische Eigenschaften, und eine hohe Wärmeformbeständigkeit aufweisen.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

Flammwidrige, schlagzähm difizierte Polycarbonat-Formmassen

5 Die vorliegende Erfindung betrifft flammwidrige mit Ppropfpolymerisat modifizierte Polycarbonat-Formmassen, enthaltend Phosphat-Verbindungen, die einen ausgezeichneten Flamschutz, sehr gute mechanische Eigenschaften, und eine hohe Wärmeformbeständigkeit aufweisen.

10 Diphosphate sind als Flamschutzadditive bekannt. In JA 59 202 240 wird die Herstellung eines solchen Produktes aus Phosphoroxichlorid, Diphenolen wie Hydrochinon oder Bisphenol A und Monophenolen wie Phenol oder Kresol beschrieben. Diese Diphosphate können in Polyamid oder Polycarbonat als Flamschutzmittel eingesetzt werden. In dieser Literaturstelle findet sich jedoch kein Hinweis auf eine 15 verbesserte Wärmeformbeständigkeit durch Zusatz des oligomeren Phosphats zu Polycarbonat-Formmassen.

20 EP-0 363 608 beschreibt flammwidrige Polymermischungen aus aromatischem Polycarbonat, styrolhaltigem Copolymer oder Ppropfcopolymer sowie oligomeren Phosphaten als Flamschutzmittel.

25 In EP-A 0 767 204 werden flammwidrige Polyphenylenoxid- (PPO)- bzw. Polycarbonat-Mischungen beschrieben, die eine Mischung aus Oligophosphaten (Typ Bisphenol A (BPA)-Oligophosphat) und Monophosphaten als Flamschutzmittel enthalten. Hohe Gehalte an Flamschutzmittel führen zu nachteiligen mechanischen Eigenschaften und reduzierter Wärmeformbeständigkeit.

30 EP-A 0 611 798 und WO 96/27600 beschreiben Formmassen, die neben Polycarbonat oligomere, endständig alkylierte Phosphorsäureester vom BPA-Typ enthalten. Aufgrund der Alkylierung sind zur Erzielung eines wirksamen Flamschutzes hohe Anteile notwendig, was für viele anwendungstechnische Eigenschaften (Mechanik, Wärmeformbeständigkeit) sehr nachteilig ist.

5 In EP-A 0 754 531 werden verstärkte PC/ABS-Formmassen beschrieben, die für Präzisionsteile geeignet sind. Als Flammeschutzmittel werden unter anderem auch Oligophosphate des BPA-Typs verwendet. Die hohen Füllstoffanteile wirken sich sehr nachteilig auf die mechanischen Eigenschaften aus.

10 EP-A 771 851 beschreibt Formmassen, die aromatisches Polycarbonat, Pfropfpolymer auf Basis von Dien-Kautschuk, SAN-Copolymer, ein Phosphat und Tetrafluorethylen-Polymeren enthalten, wobei das Polycarbonat unterschiedliche Molekulargewichte hat. Als Vorteil wird Beständigkeit gegen Schlagzähigkeitsverlust, gegen Hitze und Feuchtigkeit offenbart.

15 In EP-A 755 977 werden Polymermischungen aus aromatischem Polycarbonat, Pfropfcopolymer mit einem Kautschukgehalt < 25 % sowie oligomeren Phosphaten mit Füllgehalt < 8 % und einem N-Wert von N = 1 - 35 als Flammeschutzadditive beschrieben. In der Literaturstelle findet sich kein Hinweis auf die Verarbeitbarkeit bei höheren Füllgraden und die Fließnahtfestigkeit. Außerdem sind durch die Begrenzung des Anteiles von Phosphaten Nachteile im Flammeschutz zu erwarten.

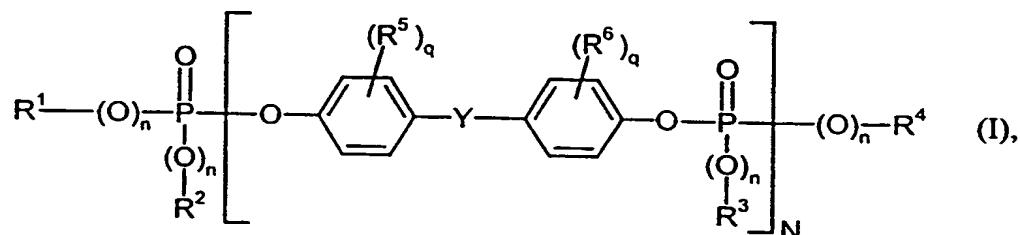
20 EP-A 747 424 beschreibt thermoplastische Harze, die Phosphatverbindungen mit einem Molekulargewicht von ungefähr 500 bis 2 000 und Phosphatverbindungen mit einem Molekulargewicht von ungefähr 2 300 bis 11 000 als Flammeschutzmittel enthalten, wobei eine Vielzahl von thermoplastischen Harzen aufgezählt werden. Durch die hohen Molekulargewichte der Phosphorverbindungen wird das Fließverhalten der Formmassen deutlich beeinträchtigt.

25 Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, flammgeschützte mit Pfropfpolymeren modifizierte PC-Formmassen bereitzustellen, welche sich durch sehr gute mechanische Eigenschaften, eine hohe Wärmeformbeständigkeit und geringe Nachbrennzeit im Brandverhalten auszeichnen und wodurch diese Formmassen für die Herstellung von Gehäuseteilen mit komplizierter Geometrie geeignet sind.

Es wurde nun gefunden, daß mit Propfpolymerat modifizierte Polycarbonat-Formmassen, die Phosphor-Verbindungen mit einer ausgewählten Anzahl von Wiederholungseinheiten enthalten, das gewünschte Eigenschaftsprofil aufweisen.

5

Gegenstand der Erfindung sind daher mit Propfpolymerisat modifizierte Polycarbonat-Formmassen enthaltend Phosphor-Verbindungen der Formel (I)



10 worin

R^1 , R^2 , R^3 und R^4 , unabhängig voneinander gegebenenfalls durch Halogen substituiertes C_1 - C_8 -Alkyl, jeweils gegebenenfalls durch Halogen und/oder Alkyl substituiertes C_5 - C_6 -Cycloalkyl, C_6 - C_{10} -Aryl oder C_7 - C_{12} -Aralkyl.

15

n unabhängig voneinander 0 oder 1

q unabhängig voneinander 0, 1, 2, 3 oder 4

20 N 0,6 bis 4, vorzugsweise 0,9 bis 2,5, insbesondere 1 bis 1,15 ist

R⁵ und R⁶ unabhängig voneinander C₁-C₄-Alkyl, vorzugsweise Methyl oder Halogen, vorzugsweise Chlor und/oder Brom bedeuten.

25 Y C₁-C₇-Alkyliden, C₁-C₇-Alkylen, C₅-C₁₂-Cycloalkylen, C₅-C₁₂-Cyclo-alkyliden, -O-, -S-, -SO-, -SO₂- oder -CO- bedeutet

- 4 -

Bevorzugt enthalten die thermoplastischen Formmassen 0,5 bis 20, besonders bevorzugt 1 bis 18 und insbesondere 2 bis 16 Gew.-Teile Phosphor-Verbindung (I) oder eine Mischung von Phosphor-Verbindungen (I).

5 Bevorzugt sind thermoplastische Formmassen enthaltend

A) 40 bis 99, vorzugsweise 60 bis 98,5 Gew.-Teile aromatisches Polycarbonat und/oder Polyestercarbonat

10 B) 0,5 bis 60, vorzugsweise 1 bis 40, insbesondere 2 bis 25 Gew.-Teile Ppropf-polymerat von

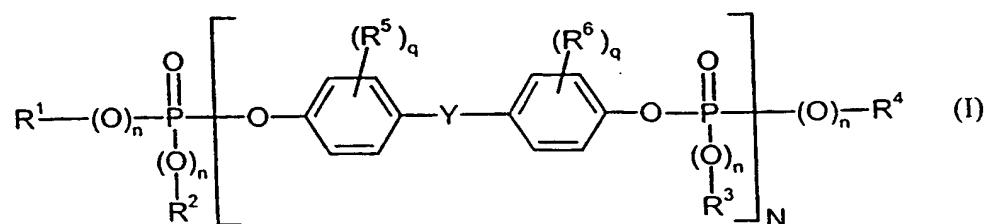
B.1) 5 bis 95, vorzugsweise 30 bis 80 Gew.-% eines oder mehrerer Vinylmonomeren auf

15

B.2) 95 bis 5, vorzugsweise 20 bis 70 Gew.-% einer oder mehrerer Pfpfegrundlagen mit einer Glasumwandlungstemperatur $<10^{\circ}\text{C}$, vorzugsweise $<0^{\circ}\text{C}$, besonders bevorzugt $<-20^{\circ}\text{C}$,

20 C) 0 bis 45, vorzugsweise 0 bis 30, besonders bevorzugt 2 bis 25 Gew.-Teile mindestens eines thermoplastischen Polymer, ausgewählt aus der Gruppe der Vinyl(co)polymerisate und Polyalkylenterephthalate,

D) 0,5 bis 20 Gew.-Teilen, bevorzugt 1 bis 18 Gew.-Teilen, besonders bevorzugt 2 bis 16 Gew.-Teilen einer Phosphorverbindung der Formel (I)



- 5 -

worin R¹ bis R⁶, Y, n, N und q die oben angegebene Bedeutung haben.

E) 0 bis 3, vorzugsweise 0,05 bis 2, besonders bevorzugt 0,1 bis 0,8 gew.-Teile, fluoriertes Polyolefin.

5

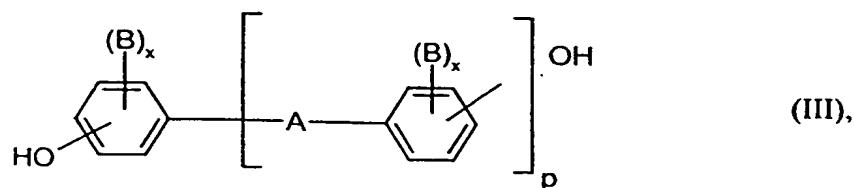
Komponente A

10 Erfindungsgemäß geeignete aromatische Polycarbonate und/oder aromatische Polyestercarbonate gemäß Komponente A sind literaturbekannt oder nach literaturbekannten Verfahren herstellbar (zur Herstellung aromatischer Polycarbonate siehe beispielsweise Schnell, "Chemistry and Physics of Polycarbonates", Interscience Publishers, 1964 sowie die DE-AS 1 495 626, DE-OS 2 232 877, DE-OS 2 703 376, DE-OS 2 714 544, DE-OS 3 000 610, DE-OS 3 832 396; zur Herstellung aromatischer Polyestercarbonate z. B. DE-OS 3 077 934).

15

Die Herstellung aromatischer Polycarbonate erfolgt z. B. durch Umsetzung von Diphenolen mit Kohlensäurehalogeniden, vorzugsweise Phosgen und/oder mit aromatischen Dicarbonsäuredihalogeniden, vorzugsweise Benzoldicarbonsäuredihalogeniden, nach dem Phasengrenzflächenverfahren, gegebenenfalls unter Verwendung von Kettenabbrechern, beispielsweise Monophenolen und gegebenenfalls unter Verwendung von trifunktionellen oder mehr als trifunktionellen Verzweigern, beispielsweise Triphenolen oder Tetraphenolen.

20 25 Diphenole zur Herstellung der aromatischen Polycarbonate und/oder aromatischen Polyestercarbonate sind vorzugsweise solche der Formel (III)



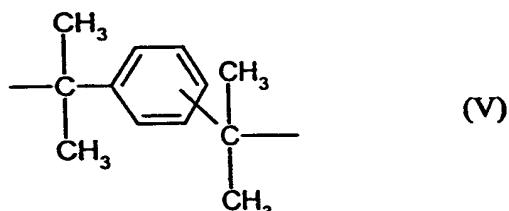
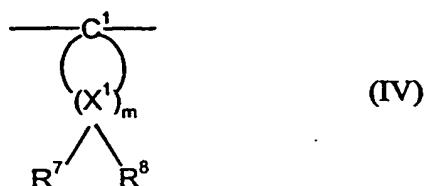
wobei

- 6 -

A eine Einfachbindung, C₁-C₅-Alkylen, C₂-C₅-Alkyliden, C₅-C₆-Cycloalkyli-
den, -O-, -SO-, -CO-, -S-, -SO₂-, C₆-C₁₂-Arylen, an das weitere aromatische
gegebenenfalls Heteroatome enthaltende Ringe kondensiert sein können,

5

oder ein Rest der Formel (IV) oder (V)



10

B jeweils C₁-C₁₂-Alkyl, vorzugsweise Methyl, Halogen, vorzugsweise Chlor
und/oder Brom

15 x jeweils unabhängig voneinander 0, 1 oder 2,

p 1 oder 0 sind, und

20 R⁷ und R⁸ für jedes X¹ individuell wählbar, unabhängig voneinander Wasserstoff
oder C₁-C₆-Alkyl, vorzugsweise Wasserstoff, Methyl oder Ethyl,

X¹ Kohlenstoff und

m eine ganze Zahl von 4 bis 7, bevorzugt 4 oder 5 bedeuten, mit der Maßgabe, daß an mindestens einen Atom X¹, R⁷ und R⁸ gleichzeitig Alkyl sind.

5 Bevorzugte Diphenole sind Hydrochinon, Resorcin, Dihydroxydiphenole, Bis-(hydroxyphenyl)-C₁-C₅-alkane, Bis-(hydroxyphenyl)-C₅-C₆-cycloalkane, Bis-(hydroxyphenyl)-ether, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfoxide, Bis-(hydroxyphenyl)-ketone, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfone und α,α -Bis-(hydroxyphenyl)-diisopropyl-benzole sowie deren kernbromierte und/oder kernchlorierte Derivate.

10 Besonders bevorzugte Diphenole sind 4,4'-Dihydroxydiphenyl, Bisphenol-A, 2,4-Bis(4-hydroxyphenyl)-2-methylbutan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan, 4,4'-Dihydroxydiphenylsulfid, 4,4'-Dihydroxydiphenyl-sulfon sowie deren di- und tetrabromierten oder chlorierten Derivate wie beispielsweise 2,2-Bis(3-Chlor-4-hydroxyphenyl)-propan, 2,2-Bis-(3,5-dichlor-4-hydroxyphenyl)-propan oder 2,2-Bis-(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan.

15 Insbesondere bevorzugt ist 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan (Bisphenol-A).

20 Es können die Diphenole einzeln oder als beliebige Mischungen eingesetzt werden.

Die Diphenole sind literaturbekannt oder nach literaturbekannten Verfahren erhältlich.

25 Für die Herstellung der thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate sind geeignete Kettenabbrecher beispielsweise Phenol, p-Chlorphenol, p-tert.-Butylphenol oder 2,4,6-Tribromphenol, aber auch langkettige Alkylphenole, wie 4-(1,3-Tetramethylbutyl)-phenol gemäß DE-OS 2 842 005 oder Monoalkylphenol bzw. Dialkylphenole mit insgesamt 8 bis 20 C-Atomen in den Alkylsubstituenten, wie 3,5-di-tert.-Butylphenol, p-iso-Octylphenol, p-tert.-Octylphenol, p-Dodecylphenol und 2-(3,5-Dimethylheptyl)-phenol und 4-(3,5-Dimethylheptyl)-phenol. Die Menge an einzusetzen-

30

- 8 -

den Kettenabbrichern beträgt im allgemeinen zwischen 0,5 Mol-%, und 10 Mol-%, bezogen auf die Molsumme der jeweils eingesetzten Diphenole.

5 Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate haben mittlere Gewichtsmittel-molekulargewichte (M_w , gemessen z. B. durch Ultrazentrifuge oder Streulichtmes-sung) von 10 000 bis 200 000, vorzugsweise 20 000 bis 80 000.

10 Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate können in bekannter Weise ver-zweigt sein, und zwar vorzugsweise durch den Einbau von 0,05 bis 2,0 Mol-%, bezo-gen auf die Summe der eingesetzten Diphenole, an dreifunktionellen oder mehr als dreifunktionellen Verbindungen, beispielsweise solchen mit drei und mehr phenoli-schen Gruppen.

15 Geeignet sind sowohl Homopolycarbonate als auch Copolycarbonate. Zur Herstel-lung erfindungsgemäßer Copolycarbonate gemäß Komponente A können auch 1 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 2,5 bis 25 Gew.-% (bezogen auf die Gesamtmenge an ein-zusetzenden Diphenolen) Polydiorganosiloxane mit Hydroxy-aryloxy-Endgruppen eingesetzt werden. Diese sind bekannt (s. beispielsweise US-Patent 3 419 634) bzw. nach literaturbekannten Verfahren herstellbar. Die Herstellung Polydiorganosiloxan-20 haltiger Copolycarbonate wird z. B. in DE-OS 3 334 782 beschrieben.

25 Bevorzugte Polycarbonate sind neben den Bisphenol-A-Homopolycarbonaten die Copolycarbonate von Bisphenol-A mit bis zu 15 Mol-%, bezogen auf die Molsum-men an Diphenolen, anderen als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannten Diphenole, insbesondere 2,2-Bis(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan.

Aromatische Dicarbonsäuredihalogenide zur Herstellung von aromatischen Poly-estercarbonate sind vorzugsweise die Disäuredichloride der Isophthalsäure, Tere-phthalsäure, Diphenylether-4,4'-dicarbonsäure und der Naphthalin-2,6-dicarbonsäure.

- 9 -

Besonders bevorzugt sind Gemische der Disäuredichloride der Isophthalsäure und der Terephthalsäure im Verhältnis zwischen 1:20 und 20:1.

5 Bei der Herstellung von Polyestercarbonaten wird zusätzlich ein Kohlensäurehalogenid, vorzugsweise Phosgen als bifunktionelles Säurederivat mitverwendet.

10 Als Kettenabbrecher für die Herstellung der aromatischen Polyestercarbonate kommen außer den bereits genannten Monophenolen noch deren Chlorkohlensäureester sowie die Säurechloride von aromatischen Monocarbonsäuren, die gegebenenfalls durch C₁-C₂₂-Alkylgruppen oder durch Halogenatome substituiert sein können, sowie aliphatische C₂-C₂₂-Monocarbonsäurechloride in Betracht.

15 Die Menge an Kettenabbrechern beträgt jeweils 0,1 bis 10 Mol-%, bezogen im Falle der phenolischen Kettenabbrecher auf Mole Diphenole und Falle von Monocarbonsäurechlorid-Kettenabbrecher auf Mole Dicarbonsäuredichloride.

Die aromatischen Polyestercarbonate können auch aromatische Hydroxycarbonsäuren eingebaut enthalten.

20 Die aromatischen Polyestercarbonate können sowohl linear als auch in bekannter Weise verzweigt sein (siehe dazu ebenfalls DE-OS 2 940 024 und DE-OS 3 007 934).

25 Als Verzweigungsmittel können beispielsweise 3- oder mehrfunktionelle Carbonsäurechloride, wie Trimesinsäuretrichlorid, Cyanursäuretrichlorid, 3,3'-,4,4'-Benzophe non-tetracarbonsäuretetrachlorid, 1,4,5,8-Naphthalintetracarbonsäuretetrachlorid oder Pyromellithsäuretetrachlorid, in Mengen von 0,01 bis 1,0 Mol-% (bezogen auf eingesetzte Dicarbonsäuredichloride) oder 3- oder mehrfunktionelle Phenole, wie Phloroglucin, 4,6-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-hepten-2,4,4-Dimethyl-2,4-6-tri-(4-hydroxyphenyl)-heptan, 1,3,5-Tri-(4-hydroxyphenyl)-benzol, 1,1,1-Tri-(4-hydroxyphenyl)-ethan, Tri-(4-hydroxyphenyl)-phenylmethan, 2,2-Bis[4,4-bis(4-

- 10 -

hydroxy-phenyl)-cyclohexyl]-propan, 2,4-Bis(4-hydroxyphenyl-isopropyl)-phenol, Tetra-(4-hydroxyphenyl)-methan, 2,6-Bis(2-hydroxy-5-methyl-benzyl)-4-methyl-phenol, 2-(4-Hydroxyphenyl)-2-(2,4-dihydroxyphenyl)-propan, Tetra-(4-[4-hydroxy-phenyl-isopropyl]-phenoxy)-methan, 1,4-Bis[4,4'-dihydroxytri-phenyl]-methyl]-benzol, in Mengen von 0,01 bis 1,0 Mol-% bezogen auf eingesetzte Diphenole verwendet werden. Phenolische Verzweigungsmittel können mit den Diphenolen vorgelegt, Säurechlorid-Verzweigungsmittel können zusammen mit den Säuredichloriden eingetragen werden.

10 In den thermoplastischen, aromatischen Polyestercarbonaten kann der Anteil an Carbonatstruktureinheiten beliebig variieren. Vorzugsweise beträgt der Anteil an Carbonatgruppen bis zu 100 Mol-%, insbesondere bis zu 80 Mol-%, besonders bevorzugt bis zu 50 Mol-%, bezogen auf die Summe an Estergruppen und Carbonatgruppen. Sowohl der Ester- als auch der Carbonatanteil der aromatischen Polyestercarbonate 15 kann in Form von Blöcken oder statistisch verteilt im Polykondensat vorliegen.

Die relative Lösungsviskosität (η_{rel}) der aromatischen Polycarbonate und Polyester-carbonate liegt im Bereich 1,18 bis 1,4, vorzugsweise 1,22 bis 1,3 (gemessen an Lösungen von 0,5 g Polycarbonat oder Polyestercarbonat in 100 ml Methylenchlorid-20 Lösung bei 25°C).

Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate und Polyestercarbonate können allein oder im beliebigen Gemisch untereinander eingesetzt werden.

25 **Komponente B**

Die Komponente B umfaßt ein oder mehrere Ppropfpolymerisate von

B.1 5 bis 95, vorzugsweise 30 bis 80 Gew.-%, wenigstens eines Vinylmonomeren 30 auf

- 11 -

B.2 95 bis 5, vorzugsweise 70 bis 20 Gew.-% einer oder mehrerer Pfropfgrundlagen mit Glasübergangstemperaturen < 10°C, vorzugsweise < 0°C, besonders bevorzugt < -20°C.

5 Die Pfropfgrundlage B.2 hat im allgemeinen eine mittlere Teilchengröße (d_{50} -Wert) von 0,05 bis 5 µm, vorzugsweise 0,10 bis 0,6 µm, besonders bevorzugt 0,1 bis 0,5, ganz besonders bevorzugt 0,20 bis 0,40 µm.

Monomere B.1 sind vorzugsweise Gemische aus

10 B.1.1 50 bis 99 Gew.-Teilen Vinylaromaten und/oder kernsubstituierten Vinylaromaten (wie beispielsweise Styrol, α -Methylstyrol, p-Methylstyrol, p-Chlorstyrol) und/oder (Meth)Acrylsäure-(C₁-C₈)-Alkylester (wie z.B. Methylmethacrylat, Ethylmethacrylat) und

15 B.1.2 1 bis 50 Gew.-Teilen Vinylcyanide (ungesättigte Nitrile wie Acrylnitril und Methacrylnitril) und/oder (Meth)Acrylsäure-(C₁-C₈)-Alkylester (wie z.B. Methylmethacrylat, n-Butylacrylat, t-Butylacrylat) und/oder Derivate (wie Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren (beispielsweise Maleinsäureanhydrid und N-Phenyl-Maleinimid).

20 Bevorzugte Monomere B.1.1 sind ausgewählt aus mindestens einem der Monomere Styrol, α -Methylstyrol und Methylmethacrylat, bevorzugte Monomere B.1.2 sind ausgewählt aus mindestens einem der Monomere Acrylnitril, Maleinsäureanhydrid und Methylmethacrylat.

25 Besonders bevorzugte Monomere sind B.1.1 Styrol und B.1.2 Acrylnitril.

30 Für die Pfropfpolymerisate B geeignete Pfropfgrundlagen B.2 sind beispielsweise Dienkautschuke, EP(D)M-Kautschuke, also solche auf Basis Ethylen/Propylen und

gegebenenfalls Dien, Acrylat-, Polyurethan-, Silikon-, Chloropren und Ethylen/Vinylacetat-Kautschuke.

5 Bevorzugte Ppropfgrundlagen B.2 sind Dienkautschuke (z. B. auf Basis Butadien, Isopren etc.) oder Gemische von Dienkautschuken oder Copolymerisate von Dienkautschuken oder deren Gemischen mit weiteren copolymerisierbaren Monomeren (z.B. gemäß B.1.1 und B.1.2), mit der Maßgabe, daß die Glasübergangstemperatur der Komponente B.2 unterhalb <10°C, vorzugsweise <0°C, besonders bevorzugt < -10°C liegt.

10

Besonders bevorzugt ist reiner Polybutadienkautschuk.

15 Besonders bevorzugte Polymerisate B sind z.B. ABS-Polymerisate (Emulsions-, Masse- und Suspensions-ABS), wie sie z. B. in der DE-OS 2 035 390 (=US-PS 3 644 574) oder in der DE-OS 2 248 242 (=GB-PS 1 409 275) bzw. in Ullmann, Enzyklopädie der Technischen Chemie, Bd. 19 (1980), S. 280 ff. beschrieben sind. Der Gelanteil der Ppropfgrundlage B.2 beträgt mindestens 30 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 40 Gew.-% (in Toluol gemessen).

20

Die Ppropfcopolymerisate B werden durch radikalische Polymerisation, z.B. durch Emulsions-, Suspensions-, Lösungs- oder Massepolymerisation, vorzugsweise durch Emulsionspolymerisation oder Massepolymerisation hergestellt.

25

Besonders geeignete Ppropfkautschuke sind auch ABS-Polymerisate, die durch Redox-Initiierung mit einem Initiatorsystem aus organischem Hydroperoxid, Cumolhydroperoxid oder t-Butylhydroperoxid und Ascorbinsäure, gemäß US-P 4 937 285 hergestellt werden.

30

Da bei der Ppropfreaktion die Ppropfmonomeren bekanntlich nicht unbedingt vollständig auf die Ppropfgrundlage aufgeppropft werden, werden erfindungsgemäß unter Ppropfpolymerisaten B auch solche Produkte verstanden, die durch (Co)Polymeri-

sation der Ppropfmonomere in Gegenwart der Ppropfgrundlage gewonnen werden und bei der Aufarbeitung mit anfallen.

5 Geeignete Acrylatkautschuke gemäß B.2 der Polymerisate B sind vorzugsweise Polymerisate aus Acrylsäurealkylestern, gegebenenfalls mit bis zu 40 Gew.-%, bezogen auf B.2 anderen polymerisierbaren, ethylenisch ungesättigten Monomeren. Zu den bevorzugten polymerisierbaren Acrylsäureestern gehören C₁-C₈-Alkylester, beispielsweise Methyl-, Ethyl-, Butyl-, n-Octyl- und 2-Ethylhexylester; Halogenalkylester, vorzugsweise Halogen-C₁-C₈-alkyl-ester, wie Chlorethylacrylat sowie Mischungen dieser Monomeren.

10 Zur Vernetzung können Monomere mit mehr als einer polymerisierbaren Doppelbindung copolymerisiert werden. Bevorzugte Beispiele für vernetzende Monomere sind Ester ungesättigter Monocarbonsäuren mit 3 bis 8 C-Atomen und ungesättigter einwertiger Alkohole mit 3 bis 12 C-Atomen, oder gesättigter Polyole mit 2 bis 4 OH-Gruppen und 2 bis 20 C-Atomen, wie z.B. Ethylenglykoldimethacrylat, Allylmethacrylat; mehrfach ungesättigte heterocyclische Verbindungen, wie z.B. Trivinyl- und Triallylcyanurat; polyfunktionelle Vinylverbindungen, wie Di- und Trivinylbenzole; aber auch Triallylphosphat und Diallylphthalat.

15 20 Bevorzugte vernetzende Monomere sind Allylmethacrylat, Ethylenglykoldimethacrylat, Diallylphthalat und heterocyclische Verbindungen, die mindestens 3 ethylenisch ungesättigte Gruppen aufweisen.

25 Besonders bevorzugte vernetzende Monomere sind die cyclischen Monomere Triallylcyanurat, Triallylisocyanurat, Triacryloylhexahydro-s-triazin, Triallylbenzole. Die Menge der vernetzten Monomere beträgt vorzugsweise 0,02 bis 5, insbesondere 0,05 bis 2 Gew.-%, bezogen auf die Ppropfgrundlage B.2.

- 14 -

Bei cyclischen vernetzenden Monomeren mit mindestens 3 ethylenisch ungesättigten Gruppen ist es vorteilhaft, die Menge auf unter 1 Gew.-% der Pfropfgrundlage B.2 zu beschränken.

5 Bevorzugte "andere" polymerisierbare, ethylenisch ungesättigte Monomere, die neben den Acrylsäureestern gegebenenfalls zur Herstellung der Pfropfgrundlage B.2 dienen können, sind z. B. Acrylnitril, Styrol, α -Methylstyrol, Acrylamide, Vinyl-C₁-C₆-alkylether, Methylmethacrylat, Butadien. Bevorzugte Acrylatkautschuke als Pfropfgrundlage B.2 sind Emulsionspolymerisate, die einen Gelgehalt von mindestens 60 Gew.-% aufweisen.

10 Weitere geeignete Pfropfgrundlagen gemäß B.2 sind Silikonkautschuke mit pfropfaktiven Stellen, wie sie in den DE-OS 3 704 657, DE-OS 3 704 655, DE-OS 3 631 540 und DE-OS 3 631 539 beschrieben werden.

15 Der Gelgehalt der Pfropfgrundlage B.2 wird bei 25°C in einem geeigneten Lösungsmittel bestimmt (M. Hoffmann, H. Krömer, R. Kuhn, Polymeranalytik I und II, Georg Thieme-Verlag, Stuttgart 1977).

20 Die mittlere Teilchengröße d_{50} ist der Durchmesser, oberhalb und unterhalb dessen jeweils 50 Gew.-% der Teilchen liegen. Er kann mittels Ultrazentrifugenmessung (W. Scholtan, H. Lange, Kolloid, Z. und Z. Polymere 250 (1972), 782-1796) bestimmt werden.

25 **Komponente C**

Die Komponente C umfaßt ein oder mehrere thermoplastische Vinyl (co)polymerisate C.1 und/oder Polyalkylenterephthalate C.2.

30 Geeignet sind als Vinyl(co)Polymerisate C.1 Polymerisate von mindestens einem Monomeren aus der Gruppe der Vinylaromaten, Vinylcyanide (ungesättigte Nitrile),

- 15 -

(Meth)Acrylsäure-(C₁-C₈)-Alkylester, ungesättigte Carbonsäuren sowie Derivate (wie Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren. Insbesondere geeignet sind (Co)Polymerisate aus

5 C.1.1 50 bis 99, vorzugsweise 60 bis 80 Gew.-Teilen Vinylaromaten und/oder kern-
substituierten Vinylaromaten wie beispielsweise Styrol, α -Methylstyrol, p-
Methylstyrol, p-Chlorstyrol) und/oder (Meth)Acrylsäure-(C₁-C₈)-Alkylester
wie z.B. Methylmethacrylat, Ethylmethacrylat), und

10 C.1.2 1 bis 50, vorzugsweise 20 bis 40 Gew.-Teilen Vinylcyanide (ungesättigte
Nitrile) wie Acrylnitril und Methacrylnitril und/oder (Meth)Acrylsäure-(C₁-
C₈)-Alkylester (wie z.B. Methylmethacrylat, n-Butylacrylat, t-Butylacrylat)
und/oder ungesättigte Carbonsäuren (wie Maleinsäure) und/oder Derivate
(wie Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren (beispielsweise
15 Maleinsäureanhydrid und N-Phenyl-Maleinimid).

Die (Co)Polymerisate C.1 sind harzartig, thermoplastisch und kautschukfrei.

Besonders bevorzugt ist das Copolymerisat aus C.1.1 Styrol und C.1.2 Acrylnitril.

20 Die (Co)Polymerisate gemäß C.1 sind bekannt und lassen sich durch radikalische
Polymerisation, insbesondere durch Emulsions-, Suspensions-, Lösungs- oder Mas-
seopolymerisation herstellen. Die (Co)Polymerisate besitzen vorzugsweise Molekular-
gewichte \bar{M}_w (Gewichtsmittel, ermittelt durch Lichtstreuung oder Sedimentation)
25 zwischen 15 000 und 200 000.

30 Die Polyalkylenterephthalate der Komponente C.2 sind Reaktionsprodukte aus aro-
matischen Dicarbonsäuren oder ihren reaktionsfähigen Derivaten, wie Dimethyl-
estern oder Anhydriden, und aliphatischen, cycloaliphatischen oder araliphatischen
Diolen sowie Mischungen dieser Reaktionsprodukte.

Bevorzugte Polyalkylenterephthalate enthalten mindestens 80 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 90 Gew.-%, bezogen auf die Dicarbonsäurekomponente Terephthalsäurereste und mindestens 80 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 90 Mol.-%, bezogen auf die Diolkomponente Ethylenglykol- und/oder Butandiol-1,4-Reste.

5

Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate können neben Terephthalsäureresten bis zu 20 Mol.-%, vorzugsweise bis zu 10 Mol.-%, Reste anderer aromatischer oder cycloaliphatischer Dicarbonsäuren mit 8 bis 14 C-Atomen oder aliphatischer Dicarbonsäuren mit 4 bis 12 C-Atomen enthalten, wie z.B. Reste von Phthalsäure, Isophthalsäure, Naphthalin-2,6-dicarbonsäure, 4,4'-Diphenyldicarbonsäure, Bernsteinsäure, Adipinsäure, Sebacinsäure, Azelainsäure, Cyclohexan-diessigsäure.

10 Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate können neben Ethylenglykol- bzw. Butandiol-1,4-Resten bis zu 20 Mol.-%, vorzugsweise bis zu 10 Mol.-%, andere aliphatische Diole mit 3 bis 12 C-Atomen oder cycloaliphatische Diole mit 6 bis 21 C-Atomen enthalten, z.B. Reste von Propandiol-1,3, 2-Ethylpropandiol-1,3, Neopentylglykol, Pentandiol-1,5, Hexandiol-1,6, Cyclohexan-dimethanol-1,4, 3-Ethylpentandiol-2,4, 2-Methylpentandiol-2,4, 2,2,4-Trimethylpentandiol-1,3, 2-Ethylhexandiol-1,3, 2,2-Diethylpropandiol-1,3, Hexandiol-2,5, 1,4-Di-(β -hydroxyethoxy)-benzol, 2,2-Bis-(4-hydroxycyclohexyl)-propan, 2,4-Dihydroxy-1,1,3,3-tetramethyl-cyclobutan, 2,2-Bis-(4- β -hydroxyethoxy-phenyl)-propan und 2,2-Bis-(4-hydroxypropoxyphenyl)-propan (DE-OS 2 407 674, 2 407 776, 2 715 932).

15 Die Polyalkylenterephthalate können durch Einbau relativ kleiner Mengen 3- oder 4-wertiger Alkohole oder 3- oder 4-basischer Carbonsäuren, z.B. gemäß DE-OS 1 900 270 und US-PS 3 692 744, verzweigt werden. Beispiele bevorzugter Verzweigungsmittel sind Trimesinsäure, Trimellithsäure, Trimethylolethan und -propan und Pentaerythrit.

20 Besonders bevorzugt sind Polyalkylenterephthalate, die allein aus Terephthalsäure und deren reaktionsfähigen Derivaten (z.B. deren Dialkylestern) und Ethylenglykol

und/oder Butandiol-1,4 hergestellt worden sind, und Mischungen dieser Polyalkylen-terephthalate.

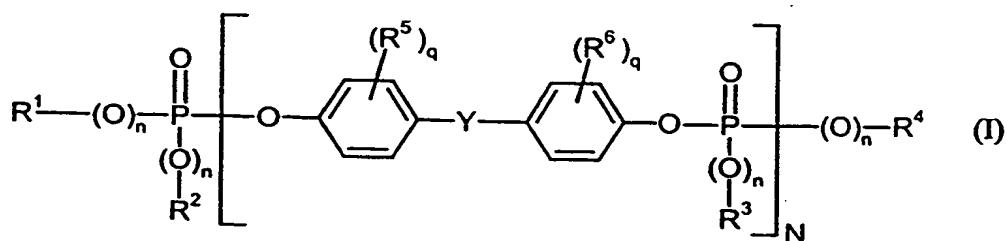
5 Mischungen von Polyalkylenterephthalaten enthalten 1 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 1 bis 30 Gew.-%, Polyethylenterephthalat und 50 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 70 bis 99 Gew.-%, Polybutylenterephthalat.

Die vorzugsweise verwendeten Polyalkylenterephthalate besitzen im allgemeinen eine Grenzviskosität von 0,4 bis 1,5 dl/g, vorzugsweise 0,5 bis 1,2 dl/g, gemessen in Phenol/o-Dichlorbenzol (1:1 Gewichtsteile) bei 25°C im Ubbelohde-Viskosimeter.

Die Polyalkylenterephthalate lassen sich nach bekannten Methoden herstellen (s. z.B. Kunststoff-Handbuch, Band VIII, S. 695 ff., Carl-Hanser-Verlag, München 1973).

15 Komponente D

Die erfindungsgemäßen Formmassen enthalten als Flammeschutzmittel Phosphorverbindungen gemäß Formel (I).



in der die Reste die o.g. Bedeutungen haben

25 Die erfundungsgemäß geeigneten Phosphorverbindungen gemäß Komponente D sind generell bekannt (s. beispielsweise Ullmanns Encyklopädie der Technischen Chemie, Bd. 18, S. 301 ff. 1979; Houben-Weyl, Methoden der Organischen Chemie, Bd. 12/1, S. 43; Beistein, Bd. 6, S. 177).

Bevorzugte Substituenten R^1 bis R^4 umfassen Methyl, Butyl, Octyl, Chlorethyl, 2-Chlorpropyl, 2,3-Dibrompropyl, Phenyl, Kresyl, Cumyl, Naphthyl, Chlorphenyl, Bromphenyl, Pentachlorphenyl und Pentabromphenyl. Besonders bevorzugt sind 5 Methyl, Ethyl, Butyl, Phenyl und Naphthyl.

Die aromatischen Gruppen R^1 , R^2 , R^3 und R^4 können mit Halogen und/oder C_1 - C_4 -Alkyl substituiert sein. Besonders bevorzugte Aryl-Reste sind Kresyl, Phenyl, Xylenyl, Propylphenyl oder Butylphenyl sowie auch die bromierten und chlorierten Derivate davon. 10

R^5 und R^6 bedeuten unabhängig voneinander vorzugsweise Methyl oder Brom.

Y steht vorzugsweise für C_1 - C_7 -Alkylen, insbesondere für Isopropyliden oder 15 Methylen, ganz besonders bevorzugt für Isopropyliden.

n in der Formel (I) kann unabhängig voneinander 0 oder 1 sein, vorzugsweise ist n gleich 1.

20 q kann 0, 1, 2, 3 oder 4 sein, vorzugsweise ist q 0, 1 oder 2.

N kann Werte von 0,5 bis 4, vorzugsweise 0,9 bis 2,5, insbesondere 1 bis 1,15 annehmen. Als erfindungsgemäße Komponente D können auch Mischungen verschiedener Phosphate eingesetzt werden. In diesem Fall ist N ein Durchschnittswert. In 25 diesem Gemisch können auch Monophosphorverbindungen ($N=0$) enthalten sein.

Die mittleren N-Werte können bestimmt werden in dem mittels geeigneter Methode (Gaschromatographie (GC), High Pressure Liquid Chromatography (HPLC), Gelpermationschromatographie (GPC)) die Zusammensetzung der Phosphat-Mischung 30 (Molekulargewichtsverteilung) bestimmt wird und daraus die Mittelwerte für N berechnet werden.

Komponente E

Als weitere Komponente können fluorierte Polyolefine zugesetzt werden.

5

Die fluorierten Polyolefine E sind hochmolekular und besitzen Glasübergangstemperaturen von über -30°C, in der Regel von über 100°C, Fluorgehalte, vorzugsweise von 65 bis 76, insbesondere von 70 bis 76 Gew.-%, mittlere Teilchendurchmesser d_{50} von 0,05 bis 1 000, vorzugsweise 0,08 bis 20 μm . Im allgemeinen haben die fluorierten Polyolefine E eine Dichte von 1,2 bis 2,3 g/cm^3 . Bevorzugte fluorierte Polyolefine E sind Polytetrafluorethylen, Polyvinylidenfluorid, Tetrafluorethylen/Hexafluorpropylen- und Ethylen/Tetrafluorethylen-Copolymerisate. Die fluorierten Polyolefine sind bekannt (vgl. "Vinyl and Related Polymers" von Schildknecht, John Wiley & Sons, Inc., New York, 1962, Seite 484-494; "Fluoropolymers" von Wall, Wiley-Interscience, John Wiley & Sons, Inc., New York, Band 13, 1970, Seite 623-654; "Modern Plastics Encyclopedia", 1970-1971, Band 47, Nr. 10 A, Oktober 1970, Mc Graw-Hill, Inc., New York, Seite 134 und 774; "Modern Plastica Encyclopedia", 1975-1976, Oktober 1975, Band 52, Nr. 10 A, Mc Graw-Hill, Inc., New York, Seite 27, 28 und 472 und US-PS 3 671 487, 3 723 373 und 3 838 092).

10

15

20

25

30

Sie können nach bekannten Verfahren hergestellt werden, so beispielsweise durch Polymerisation von Tetrafluorethylen in wäßrigem Medium mit einem freie Radikale bildenden Katalysator, beispielsweise Natrium-, Kalium- oder Ammoniumperoxidi-sulfat bei Drucken von 7 bis 71 kg/cm^2 und bei Temperaturen von 0 bis 200°C, vorzugsweise bei Temperaturen von 20 bis 100°C. (Nähere Einzelheiten s. z. B. US-Patent 2 393 967). Je nach Einsatzform kann die Dichte dieser Materialien zwischen 1,2 und 2,3 g/cm^3 , die mittlere Teilchengröße zwischen 0,5 und 1 000 μm liegen.

Erfindungsgemäß bevorzugte fluorierte Polyolefine E sind Tetrafluorethylenpolymere mit mittleren Teilchendurchmesser von 0,05 bis 20 μm , vorzugsweise 0,08 bis 10 μm , und eine Dichte von 1,2 bis 1,9 g/cm^3 und werden vorzugsweise in Form

einer koagulierten Mischung von Emulsionen der Tetrafluorethylenpolymerisate E mit Emulsionen der Propfpolymerisate B eingesetzt. Geeignete Tetrafluorethylenpolymerisat-Emulsionen sind handelsübliche Produkte und werden beispielsweise von der Firma DuPont als Teflon® 30 N angeboten.

5

Geeignete, in Pulverform einsetzbare fluorierte Polyolefine E sind Tetrafluorethylenpolymerisate mit mittleren Teilchendurchmesser von 100 bis 1 000 μm und Dichten von 2,0 g/cm^3 bis 2,3 g/cm^3 und werden von den Firmen DuPont als Teflon und Dyneon GmbH, (Burgkirchen, Deutschland) unter dem Handelsnamen Hostaflon® 10 PTFE angeboten.

Die erfindungsgemäßen Formmassen können weingstens eines der üblichen Additive, wie Gleit- und Entformungsmittel, beispielsweise Pentaerythrittriestearat, Nukleiermittel, Antistatika, Stabilisatoren, Füll- und Verstärkungsstoffe sowie Farbstoffe und Pigmente enthalten.

Die gefüllten bzw. verstärkten Formmassen können bis zu 60, vorzugsweise 10 bis 40 Gew.-%, bezogen auf die gefüllte bzw. verstärkte Formmasse, Füll- und/oder Verstärkungsstoffe enthalten. Bevorzugte Verstärkungsstoffe sind Glasfasern. Bevorzugte Füllstoffe, die auch verstärkend wirken können, sind Glaskugeln, Glimmer, 20 Silikate, Quarz, Talkum, Titandioxid, Wollastonit.

Die erfindungsgemäßen Formmassen können bis zu 35 Gew.-%, bezogen auf die Gesamt-Formmasse, eines weiteren, gegebenenfalls synergistisch wirkenden Flammeschutzmittels enthalten. Beispielhaft werden als weitere Flammeschutzmittel organische Halogenverbindungen wie Decabrombisphenylether, Tetrabrombisphenol, anorganische Halogenverbindungen wie Ammoniumbromid, Stickstoffverbindungen, wie Melamin, Melaminformaldehyd-Harze, anorganische Hydroxidverbindungen wie Mg-, Al-Hydroxid, anorganische Verbindungen wie Antimonoxide, Bariummetaborat, Hydroxoantimonat, Zirkonoxid, Zirkonhydroxid, Molybdenoxid, Ammoniummolybdat, Zinkborat, Ammoniumborat, Bariummetaborat, Talk, Silikat, Siliziumoxid 25 30

und Zinnoxid sowie Siloxanverbindungen genannt. Als Flammeschutzmittel können weiterhin auch Monophosphatverbindungen, oligomere Phosphatverbindungen oder Mischungen daraus eingesetzt werden. Solche Phosphorverbindungen sind in EP-A 363 608, EP-A 345 522 und DE-OS 197 21 628 beschrieben.

5

Die erfindungsgemäßen Formmassen enthaltend die Komponenten A bis E und gegebenenfalls weiteren bekannten Zusätzen wie Stabilisatoren, Farbstoffen, Pigmenten, Gleit- und Entformungsmitteln, Nukleiermittel sowie Antistatika, Füll- und Verstärkungsstoffe werden hergestellt, indem man die jeweiligen Bestandteile in bekannter Weise vermischt und bei Temperaturen von 200°C bis 300°C in üblichen Aggregaten wie Innenknetern, Extrudern und Doppelwellenschnecken schmelzcompoundiert und schmelzextrudiert, wobei die Komponente E vorzugsweise in Form der bereits erwähnten koagulierten Mischung eingesetzt wird.

15

Die Vermischung der einzelnen Bestandteile kann in bekannter Weise sowohl sukzessive als auch simultan erfolgen, und zwar sowohl bei etwa 20°C (Raumtemperatur) als auch bei höherer Temperatur.

20

Gegenstand der Erfindung ist daher auch ein Verfahren zur Herstellung der Formmassen.

25

Die erfindungsgemäßen thermoplastischen Formmassen eignen sich aufgrund ihrer ausgezeichneten Flammfestigkeit, insbesondere der kurzen Nachbrennzeit, und ihrer guten mechanischen Eigenschaften und ihre hohe Wärmeformbeständigkeit zur Herstellung von Formkörpern jeglicher Art, insbesondere solchen mit erhöhten Anforderungen an mechanischen Eigenschaften.

30

Die Formmassen der vorliegenden Erfindung können zur Herstellung von Formkörpern jeder Art verwendet werden. Insbesondere können Formkörper durch Spritzguß hergestellt werden. Beispiele für herstellbare Formkörper sind: Gehäuseteile jeder Art, z.B. für Haushaltsgeräte wie Saftpressen, Kaffeemaschinen, Mixer, für Büro-

maschinen, wie Monitore, Drucker, Kopierer oder Abdeckplatten für den Bausektor und Teile für den Kfz-Sektor. Sie sind außerdem auf dem Gebiet der Elektrotechnik einsetzbar, weil sie sehr gute elektrische Eigenschaften haben.

5 Weiterhin können die erfindungsgemäßen Formmassen beispielsweise zur Herstellung von folgenden Formkörpern bzw. Formteilen verwendet werden:

1. Innenausbauteile für Schienenfahrzeuge
2. Radkappen
- 10 3. Gehäuse von Kleintransformatoren enthaltenden Elektrogeräten
4. Gehäuse für Geräte zur Informationsverbreitung und -Übermittlung
5. Gehäuse und Verkleidung für medizinische Zwecke
6. Massagegeräte und Gehäuse dafür
7. Spielfahrzeuge für Kinder
- 15 8. Flächige Wandelemente
9. Gehäuse für Sicherheitseinrichtungen
10. 10. Heckspoiler
11. 11. Wärmeisolierende Transportbehältnisse
12. 12. Vorrichtung zur Haltung oder Versorgung von Kleintieren
- 20 13. Formteile für Sanitär- und Badeausrüstungen
14. 14. Abdeckgitter für Lüftöffnungen
15. 15. Formteile für Garten- und Gerätehäuser
16. 16. Gehäuse für Gartengeräte.

25 Eine weitere Form der Verarbeitung ist die Herstellung von Formkörpern durch Tiefziehen aus vorher hergestellten Platten oder Folien.

Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist daher auch die Verwendung der erfindungsgemäßen Formmassen zur Herstellung von Formkörpern jeglicher Art, vorzugsweise der oben genannten, sowie die Formkörper aus den erfindungsgemäßen Formmassen.

Beispiele**Komponente A**

5 Polycarbonat auf Basis Bisphenol A mit einer relativen Lösungsviskosität von 1,255, gemessen in Methylenechlorid bei 25°C und in einer Konzentration von 0,5 g/100 ml.

Komponente B

10 B.1: Pfpolymerisat von 40 Gew.-Teilen Styrol und Acrylnitril im Verhältnis von 73:27 auf 60 Gew.-Teile teilchenförmigen vernetzten Polybutadienkautschuk (mittlerer Teilchendurchmesser $d_{50} = 0,28\mu\text{m}$), hergestellt durch Emulsionspolymerisation unter Verwendung eines Redoxinitiators aus t-Butylhydroperoxid und Ascorbinsäure.

15 B.2: Silikonpfpfkautschuk

1. Herstellung der Silikonkautschuk-Emulsion

20 38,4 Gew.-Teile Octamethylcyclotetrasiloxan, 1,2 Gew.-Teile Tetramethyl-tetravinylcyclotetrasiloxan und 1 Gew.-Teil Mercaptopropylmethyldimethoxysilan werden miteinander verrührt. 0,5 Gew.-Teile Dodecylbenzolsulfonsäure werden zugefügt, anschließend 58,4 Gew.-Teile Wasser innerhalb einer Stunde zugegeben. Dabei wird intensiv gerührt. Die Voremulsion wird mit Hilfe einer Hochdruckemulgiermaschine zweimal bei 200 bar homogenisiert. Man gibt weitere 0,5 Gew.-Teile Dodecylbenzolsulfonsäure hinzu. Die Emulsion wird 2 Stunden bei 85°C und anschließend 36 Stunden bei 20°C gerührt. Neutralisiert wird mit Hilfe von 5n-NaOH. Es resultiert eine stabile Emulsion mit einem Feststoffgehalt von ca. 36 Gew.-%. Das Polymer besitzt einen Gelgehalt von 82 Gew.-%, gemessen in Toluol; der mittlere Teilchendurchmesser d_{50} beträgt 300 nm.

25

30

2. Herstellung des gepropften Silikonkautschuks

In einem Reaktor werden vorgelegt:

5

2107 Gew.-Teile Latex gemäß 1) und
1073 Gew.-Teile Wasser.

10

Nach Initiierung mit einer Lösung von 7,5 Gew.-Teilen Kaliumperoxydisulfat in 195 Gew.-Teilen Wasser bei 65°C werden jeweils folgende Lösungen zur Herstellung des Ppropfkautschuks innerhalb von 4 Stunden gleichmäßig eingespeist:

15

Lösung 1: 540 Gew.-Teile Styrol und
210 Gew.-Teile Acrylnitril;

Lösung 2: 375 Gew.-Teile Wasser und
15 Gew.-Teile Natriumsalz von C₁₄-C₁₈-Alkylsulfonsäuren.

20

Anschließend wird jeweils innerhalb von 6 Stunden bei 65°C auspolymerisiert. Es resultiert ein Latex mit einem Feststoffgehalt von ca. 33 Gew.-%.

25

Nach Koagulation mit einer wäßrigen Magnesiumchlorid/Essigsäurelösung, Filtration und Trocknung im Vakuum werden die Ppropfpolymerisate in Form weißer Pulver erhalten.

30

B.3: Acrylatppropfkautschuk

Ppropfpolymerisat von 40 Gew.-Teilen eines Copolymerisates aus Styrol und Acrylnitril im Verhältnis von 72:28 auf 60 Gew.-Teile teilchenförmigen vernetzten Polyacrylatkautschuk (mittlerer Teilchendurchmesser d₅₀ = 0,5 µm) hergestellt durch Emulsionspolymerisation.

B.4: EPDM-Pfropfkautschuk

5

Pfropfpolymerisat von 50 Gew.-Teilen eines Copolymerisats aus Styrol und Acrylnitril im Verhältnis von 72:28 auf 50 Gew.-Teile vernetzten EPDM-Kautschuk der Fa. Uniroyal Chemical Company, Handelsname Royaltuf 372 P20.

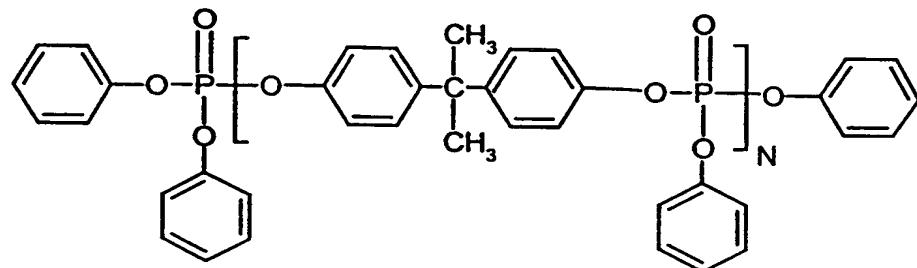
Komponente C

10

Styrol/Acrylnitril-Copolymerisat mit einem Styrol/Acrylnitril-Verhältnis von 72:28 und einer Grenzviskosität von 0,55 dl/g (Messung in Dimethylformamid bei 20°C).

Komponente D

15



20

D.1 N = 0,5
 D.2 N = 0,8
 D.3 N = 1,06
 D.4 N = 1,10
 D.5 N = 1,13
 D.6 N = 1,7

25

Zur Bestimmung des mittleren N-Wertes werden zuerst die Anteile der monomeren und oligomeren Phosphate durch HPLC-Messungen bestimmt:

Säulentyp: LiChrosorp RP-8

Elutionsmittel im Gradienten:

- 26 -

Acetonitril/Wasser 50:50 bis 100:0

Konzentration 5 mg/ml

Aus den Anteilen der einzelnen Komponenten Mono- und Oligophosphate werden

5 dann nach bekannten Verfahren die zahlengewichteten Mittelwerte berechnet.

Komponente E

Teflon® 30N der Firma DuPont, Wilmington, Delaware, U.S.A.

10

Herstellung und Prüfung der erfundungsgemäßen Formmassen

Das Mischen der Komponenten mit den üblichen Verarbeitungshilfsmitteln erfolgt

auf einem Doppelwellenextruder ZSK 32. Die Formkörper werden auf einer Spritz-

15 gußmaschine Typ Arburg 270E bei 260°C hergestellt.

Die Bestimmung der Wärmeformbeständigkeit nach Vicat B erfolgt gemäß DIN

53 460 an Stäben der Abmessung 80 x 10 x 4 mm.

20

Die Bestimmung der Fließnahtfestigkeit erfolgt nach DIN 53 453.

Die Bestimmung der Zugfestigkeit erfolgt nach ISO 527/DIN 53 457.

Die Flammwidrigkeit wird nach UL94V bestimmt.

25

- 27 -

Tabelle 1**Zusammensetzung und Eigenschaften der Formmassen**

	1 Ver- gleich	2	3	4	5	6	7	8	9
Komponenten [Gew.-Tie.]									
A	68,4	68,4	68,4	68,4	68,4	68,4	68,4	68,4	68,4
B.1	10,6	10,6	10,6	10,6	10,6	10,6			
B.2	10,6						10,6		
B.3	10,6							10,6	
B.4	10,6								10,6
C	9,3	9,3	9,3	9,3	9,3	9,3	9,3	9,3	9,3
D.1 (Vergleich)	12,0	-	-	-	-	-			
D.2	-	12,0	-	-	-	-			
D.3	-	-	12,0	-	-	-	12,0	12,0	12,0
D.4	-	-	-	12,0	-	-			
D.5	-	-	-	-	12,0	-			
D.6	-	-	-	-	-	12,0			
E	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4
PETS*	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4
Eigenschaften									
Vicat B 120 [°C]	93	98	102	103	104	106	102	103	103
Zugfestigkeit [N/mm²]	54,2	57,8	58,0	58,3	58,5	55,5	57,5	58,7	58,3
UL 94 V 1,6 mm									
Gesamtbrennzeit [s]	21	28	36	36	38	65	20	35	38
Bewertung	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-1	VO	VO	VO
Fließnahtfestigkeit auf [kJ/m²]	5,8	6,2	7,9	8,6	8,8	8,3	7,3	9,4	9,0

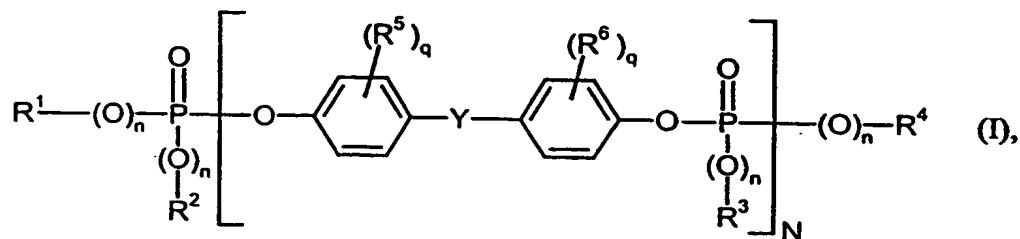
Aus der Tabelle 1 wird deutlich, daß nur die erfindungsgemäßen Formmassen eine optimale Eigenschaftskombination aus Wärmeformbeständigkeit, Zug-E-Modul, Fließverhalten und Flammenschutz aufweisen. Besitzen die als Flammenschutzmittel eingesetzten Phosphate niedrigere Kondensationsgrade, so ist zwar Fließverhalten und Flammenschutz günstiger, Wärmeformbeständigkeit und Fließnahtfestigkeit erreichen jedoch nicht das für viele Anwendungen geforderte Niveau.

5

Patentansprüche

1. Mit Ppropfpolymerisat modifizierte thermoplastische Polycarbonat-Formmasse, enthaltend eine Phosphorverbindung der Formel (I)

5



worin

10 R^1 , R^2 , R^3 und R^4 , unabhängig voneinander gegebenenfalls durch Halogen substituiertes C_1 - C_8 -Alkyl, jeweils gegebenenfalls durch Halogen und/oder Alkyl substituiertes C_5 - C_6 -Cycloalkyl, C_6 - C_{10} -Aryl oder C_7 - C_{12} -Aralkyl,

15 n unabhängig voneinander 0 oder 1,

q unabhängig voneinander 0, 1, 2, 3 oder 4,

N 0, 6 bis 4 bedeuten,

20 R^5 und R^6 unabhängig voneinander C_1 - C_4 -Alkyl oder Halogen bedeuten,

25 Y C_1 - C_7 -Alkyliden, C_1 - C_7 -Alkylen, C_5 - C_{12} -Cycloalkylen, C_5 - C_{12} -Cycloalkyliden, -O-, -S-, -SO-, -SO₂- oder -CO- bedeutet.

2. Formmasse gemäß Anspruch 1, enthaltend 0,5 bis 20 Gew.-Teile Phosphor-Verbindung (I) oder eine Mischung von Phosphor-Verbindungen (I).

h. 27 33 591

- 30 -

3. Formmasse gemäß Anspruch 1, enthaltend 1 bis 18 Gew.-Teile Phosphor-Verbindung (I) oder eine Mischung von Phosphor-Verbindungen (I).
4. Formmasse gemäß Anspruch 1, enthaltend 2 bis 16 Gew.-Teile Phosphor-Verbindung (I) oder eine Mischung von Phosphor-Verbindungen (I).
5. Formmasse nach Anspruch 1 bis 4, wobei N in Formel (I) 0,9 bis 2,5 bedeutet.
- 10 6. Formmasse nach Anspruch 1 bis 4, wobei N in Formel (I) 1 bis 1,15 bedeutet.
7. Formmasse nach einem der vorhergehenden Ansprüche enthaltend 0,5 bis 60 Gew.-Teile Ppropfpolymerisat.
- 15 8. Formmasse nach Anspruch 7, enthaltend 1 bis 40 Gew.-Teile Ppropfpolymerisat.
9. Formmasse nach einem der vorhergehenden Ansprüche enthaltend Ppropfpolymerisate aus
- 20 5 bis 95 Gew.-Teilen einer Mischung aus
- 25 50 bis 95 Gew.-Teilen Styrol, α -Methylstyrol, halogen- oder alkylkernsubstituiertem Styrol, C₁-C₈-Alkylmethacrylat, C₁-C₈-Alkylacrylat oder Mischungen dieser Verbindungen und
- 30 5 Bis 50 Gew.-Teilen Acrylnitril, Methacrylnitril, C₁-C₈-Alkylmethacrylat, C₁-C₈-Alkylacrylat, Maleinsäureanhydrid, C₁-C₄-alkyl- bzw. phenyl-N-substituiertem Maleinimid oder Mischungen dieser Verbindungen auf

30

h. M 33591

- 31 -

5 bis 95 Gew.-Teile Kautschuk mit einer Glasübergangstemperatur unter -10°C.

10. Formmasse nach einem der vorhergehenden Ansprüche enthaltend

5

A) 40 bis 99 Gew.-Teile aromatisches Polycarbonat und/oder Polyester-carbonat

10

B) 0,5 bis 60 Gew.-Teile Pfronfpolymerisat von

B.1) 5 bis 95 Gew.-% eines oder mehrerer Vinylmonomeren auf

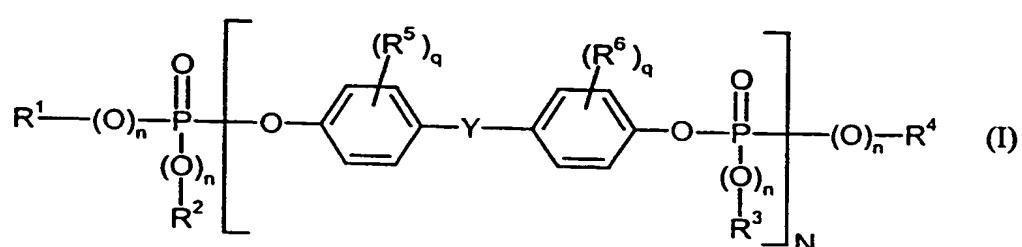
B.2) 95 bis 5 Gew.-% einer oder mehrerer Pfropfgrundlagen mit einer Glasumwandlungstemperatur $< 10^{\circ}\text{C}$

15

C) 0 bis 45 Gew.-Teile mindestens eines thermoplastischen Polymers, ausgewählt aus der Gruppe der Vinyl(co)polymerisate und Poly-alkylenterephthalate.

20

D) 0,5 bis 20 Gew.-Teilen einer Phosphorverbindung der Formel (I)



E) 0 bis 3 Gew.-Teile fluoriertes Polyolefin

25

11. Formmassen nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei Y in Formel (I) für Isopropyliden oder Methylen steht

h. A 33 591

- 32 -

12. Formmassen nach einem der vorhergehenden Ansprüche, enthaltend als Pfropfgrundlage B.2 einen Dienkautschuk, Acrylatkautschuk, Silikonkautschuk oder Ethylen-Propylen-Dien-Kautschuk oder Mischungen davon.
5
13. Formmassen nach einem der Ansprüche 1 bis 12, wobei sie mindestens einen Zusatz aus der Gruppe der Stabilisatoren, Pigmente, Entformungsmittel, Fließhilfsmittel und/oder Antistatika, Füll- und Verstärkungsstoffe enthalten.
- 10 14. Verwendung der Formmassen nach einem der vorhergehenden Ansprüche zur Herstellung von Formkörpern.
15. Formkörper, erhältlich aus Formmassen nach einem der vorhergehenden Ansprüche.

15

he M 33 891

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.
PCT/EP 00/02241

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C08K5/523 C08L69/00 // (C08L69/00, 51:04), (C08L69/00, 55:02, 25:12)

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 7 C08K C08L

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

WPI Data, PAJ, CHEM ABS Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 96 27600 A (KATSUMATA TSUTOMU ; UEDA EIJI (JP); KASAHARA HIDEO (JP); ASAHI CHEM) 12 September 1996 (1996-09-12) cited in the application & US 6 083 428 A 4 July 2000 (2000-07-04) claims 1,2; examples 6-9; table 3 column 11, line 1 - line 12	1-4, 7-15
X	EP 0 611 798 A (ASAHI CHEMICAL IND) 24 August 1994 (1994-08-24) cited in the application claims 1,12,15-18; example 23; tables 1,10 page 7, line 26 -page 9, line 43	1-4, 7-15
X	DE 197 34 661 A (BAYER AG) 18 February 1999 (1999-02-18) claims 1-14; example 4	1-4, 7-15
-/-		

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

3 August 2000

Date of mailing of the international search report

11/08/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Krische, D

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP 00/02241

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 5 864 004 A (SUNG RYONG KIM ET AL) 26 January 1999 (1999-01-26) claim 1; examples 1-3 column 5, line 17 - line 23 column 6, line 42 - line 65	1-4,7-15
X	BRIGHT ET AL: "aromatic oligomeric phosphates" ANNU. TECH. CONF.-SOC. PLAST. ENG., vol. 56, no. 3, 26 April 1998 (1998-04-26), pages 2875-2879-9, XP002101625 the whole document	1-4, 7-12,14, 15
X	EP 0 816 434 A (BASF AG) 7 January 1998 (1998-01-07) claims 1-4,8,9; example 1 page 8, line 57 -page 9, line 20	1-4, 7-10, 12-15
X	EP 0 522 397 A (BAYER AG) 13 January 1993 (1993-01-13) claims 1,8,9,11; example 3; table 1	1-4,7-15
P,X	FR 2 781 807 A (CHEIL IND INC) 4 February 2000 (2000-02-04) claims 1-11; example 1; table 4 page 6, line 7 - line 21 page 17, line 20 -page 18, line 12 page 20, line 15 -page 23, line 5	1-5,7-15
P,X	EP 0 936 243 A (GEN ELECTRIC) 18 August 1999 (1999-08-18) claims 1,5-9; example 2 page 9, line 44 -page 10, line 2	1-5,7-15
E	DE 198 53 108 A (BAYER AG) 25 May 2000 (2000-05-25) claims 1-5,12-14; example 3	1-10, 12-15

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/02241

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date
WO 9627600	A 12-09-1996	DE 19681298 T US 6083428 A		02-04-1998 04-07-2000
EP 0611798	A 24-08-1994	DE 69321704 D DE 69321704 T FI 940464 A KR 163445 B US 5455292 A CN 1082074 A, B WO 9403535 A JP 2672932 B JP 7053876 A JP 6100760 A		26-11-1998 01-07-1999 07-02-1994 15-01-1999 03-10-1995 16-02-1994 17-02-1994 05-11-1997 28-02-1995 12-04-1994
DE 19734661	A 18-02-1999	AU 9070898 A WO 9907782 A EP 1003810 A		01-03-1999 18-02-1999 31-05-2000
US 5864004	A 26-01-1999	DE 19843922 A GB 2329639 A		01-04-1999 31-03-1999
EP 0816434	A 07-01-1998	DE 19626156 A JP 10060246 A		08-01-1998 03-03-1998
EP 0522397	A 13-01-1993	DE 4123041 A JP 5214231 A US 5272193 A		14-01-1993 24-08-1993 21-12-1993
FR 2781807	A 04-02-2000	NONE		
EP 0936243	A 18-08-1999	CN 1229102 A JP 11310695 A		22-09-1999 09-11-1999
DE 19853108	A 25-05-2000	WO 0029476 A		25-05-2000



INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/02241

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 C08K5/523 C08L69/00 // (C08L69/00, 51:04), (C08L69/00, 55:02,
25:12)

Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 C08K C08L

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

WPI Data, PAJ, CHEM ABS Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 96 27600 A (KATSUMATA TSUTOMU ; UEDA EIJI (JP); KASAHARA HIDEO (JP); ASAHI CHEM) 12. September 1996 (1996-09-12) in der Anmeldung erwähnt & US 6 083 428 A 4. Juli 2000 (2000-07-04) Ansprüche 1,2; Beispiele 6-9; Tabelle 3 Spalte 11, Zeile 1 - Zeile 12	1-4,7-15
X	EP 0 611 798 A (ASAHI CHEMICAL IND) 24. August 1994 (1994-08-24) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche 1,12,15-18; Beispiel 23; Tabellen 1,10 Seite 7, Zeile 26 -Seite 9, Zeile 43	1-4,7-15
X	DE 197 34 661 A (BAYER AG) 18. Februar 1999 (1999-02-18) Ansprüche 1-14; Beispiel 4	1-4,7-15

-/-

<input checked="" type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen	<input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie
* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :	
A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist	*T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist	*X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden
L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchebericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)	*Y* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann nahelegend ist
O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht	*&* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist
P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist	
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Rechercheberichts
3. August 2000	11/08/2000
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Bevollmächtigter Bediensteter Krische, D

INTERNATIONALES RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/02241

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 5 864 004 A (SUNG RYONG KIM ET AL) 26. Januar 1999 (1999-01-26) Anspruch 1; Beispiele 1-3 Spalte 5, Zeile 17 - Zeile 23 Spalte 6, Zeile 42 - Zeile 65	1-4, 7-15
X	BRIGHT ET AL: "aromatic oligomeric phosphates" ANNU. TECH. CONF.-SOC. PLAST. ENG., Bd. 56, Nr. 3, 26. April 1998 (1998-04-26), Seiten 2875-2879-9, XP002101625 das ganze Dokument	1-4, 7-12, 14, 15
X	EP 0 816 434 A (BASF AG) 7. Januar 1998 (1998-01-07) Ansprüche 1-4,8,9; Beispiel 1 Seite 8, Zeile 57 -Seite 9, Zeile 20	1-4, 7-10, 12-15
X	EP 0 522 397 A (BAYER AG) 13. Januar 1993 (1993-01-13) Ansprüche 1,8,9,11; Beispiel 3; Tabelle 1	1-4, 7-15
P, X	FR 2 781 807 A (CHEIL IND INC) 4. Februar 2000 (2000-02-04) Ansprüche 1-11; Beispiel 1; Tabelle 4 Seite 6, Zeile 7 - Zeile 21 Seite 17, Zeile 20 -Seite 18, Zeile 12 Seite 20, Zeile 15 -Seite 23, Zeile 5	1-5, 7-15
P, X	EP 0 936 243 A (GEN ELECTRIC) 18. August 1999 (1999-08-18) Ansprüche 1,5-9; Beispiel 2 Seite 9, Zeile 44 -Seite 10, Zeile 2	1-5, 7-15
E	DE 198 53 108 A (BAYER AG) 25. Mai 2000 (2000-05-25) Ansprüche 1-5,12-14; Beispiel 3	1-10, 12-15

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/02241

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung		Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
WO 9627600	A	12-09-1996		DE 19681298 T US 6083428 A		02-04-1998 04-07-2000
EP 0611798	A	24-08-1994		DE 69321704 D DE 69321704 T FI 940464 A KR 163445 B US 5455292 A CN 1082074 A, B WO 9403535 A JP 2672932 B JP 7053876 A JP 6100760 A		26-11-1998 01-07-1999 07-02-1994 15-01-1999 03-10-1995 16-02-1994 17-02-1994 05-11-1997 28-02-1995 12-04-1994
DE 19734661	A	18-02-1999		AU 9070898 A WO 9907782 A EP 1003810 A		01-03-1999 18-02-1999 31-05-2000
US 5864004	A	26-01-1999		DE 19843922 A GB 2329639 A		01-04-1999 31-03-1999
EP 0816434	A	07-01-1998		DE 19626156 A JP 10060246 A		08-01-1998 03-03-1998
EP 0522397	A	13-01-1993		DE 4123041 A JP 5214231 A US 5272193 A		14-01-1993 24-08-1993 21-12-1993
FR 2781807	A	04-02-2000		KEINE		
EP 0936243	A	18-08-1999		CN 1229102 A JP 11310695 A		22-09-1999 09-11-1999
DE 19853108	A	25-05-2000		WO 0029476 A		25-05-2000

